

**АНОМАЛЬНОЕ ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ
НА НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ТЕПЛОВОЕ РАСШИРЕНИЕ
ВТСП СИСТЕМ $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ И $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$
В НЕСВЕРХПРОВОДЯЩЕЙ ФАЗЕ**

И. Б. Крынецкий¹, А. Крапф², В. П. Мартовицкий³, Н. П. Шабанова³,
С. Ю. Гаврилкин³, В. И. Коваленко³, А. П. Русаков⁴, А. И. Головашкин³

На монокристаллах высокотемпературной сверхпроводящей (ВТСП) системы $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ в диэлектрической фазе с составами, не имеющими сверхпроводящего перехода до температуры 1.8 К ($x \geq 0.8$), измерено тепловое расширение в произвольном направлении в (ab)-плоскости в диапазоне температур 7–50 К. Обнаружены температурные области сжатия материала при нагревании. Исследование аномалии в магнитном поле 3 и 6 Тл, параллельном и перпендикулярном с-оси, обнаружило анизотропный и немонотонный характер влияния поля на тепловое расширение. На образце ВТСП с n-типом проводимости $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$, также не имеющем сверхпроводящего перехода, подобные аномалии выявлены впервые. Результаты показывают, что природа аномалии обусловлена анизотропным электронным упорядочением, возможно, волной зарядовой плотности в плоскости CuO_2 и флуктуациями сверхпроводимости в диэлектрической фазе.

Ключевые слова: высокотемпературные сверхпроводники, аномальное тепловое расширение, волна зарядовой плотности, флуктуационная сверхпроводимость.

Отрицательное тепловое расширение при низких температурах было обнаружено как в безмедных, так и в купратных оксидных высокотемпературных сверхпроводя-

¹ Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия.

² Humboldt-Universität, Institut für Physik, 12489 Berlin, Germany.

³ Учреждение Российской академии наук Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия; e-mail: shaban@sci.lebedev.ru.

⁴ Московский государственный институт стали и сплавов, 117936 Москва, Россия.

щих (ВТСП) системах [1–3]. Существуют различные представления о возможных механизмах такой аномалии [2–6]. В работах [2–4] была предложена физическая модель аномалии, основанная на идее волны зарядовой плотности (ВЗП) в кислородной подрешетке оксидных ВТСП, стабилизирующей их структуру [2–4]. В настоящее время отрицательное тепловое расширение других материалов, в частности тетраэдрических полупроводников, также связывают с ВЗП [7]. Неоднородное электронное упорядочение в ВТСП предполагалось теоретически [1–4, 8]. Современные туннельные измерения выявили сильно неоднородное и анизотропное распределение электронной плотности и ВЗП в плоскостях CuO_2 купратов $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ (Bi2201) и других [9, 10].

Предложенная физическая модель с ВЗП [2–4] предполагает существование аномалии теплового расширения в диэлектрической фазе ВТСП. Известно, что в купратных оксидах в этой фазе наблюдается энергетическая щель в электронном спектре, возникающая из-за переноса заряда $\text{Cu}3d\text{--O}2p$ [11]. Возникновение щели может проявляться в структурных особенностях и приводить к целому ряду аномалий. Согласно [2–4], тепловые аномалии, обусловленные существованием ВЗП, должны быть чувствительны к экранированию при электронном допинге, а также, в силу особенностей электронной структуры, к магнитному полю.

Заметное влияние электронного допинга и магнитного поля до 4 Тл на аномальную температурную зависимость коэффициента теплового расширения КТР при низких температурах действительно обнаружено для ВТСП оксидов [1–3], что подтверждает электронную природу аномалий. В частности, такие исследования выполнены для сверхпроводящих составов системы $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ (La-Bi2201) [3]. Тепловое расширение диэлектрической фазы La-Bi2201, её несверхпроводящих составов, остается неизученным. Отсутствуют данные о влиянии ориентации магнитного поля относительно c -оси на тепловое расширение ВТСП в (ab) -плоскости. Получение таких данных представляет интерес, поскольку предполагаемые механизмы отрицательного теплового расширения, зарядовое и, возможно, спиновое упорядочение на границе антиферромагнетизма и сверхпроводимости в плоскости CuO_2 в ВТСП купратах [6] характеризуются анизотропным электронным порядком.

В настоящей работе проводится экспериментальное исследование низкотемпературного теплового расширения ВТСП системы $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ в диэлектрической фазе с составами, не имеющими сверхпроводящих переходов ($x \geq 0.8$), во внешнем магнитном поле H до 6 Тл при его различной ориентации относительно c -оси.

Электронный допинг при замещении стронция лантаном снижает концентрацию свободных дырок в системе $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$. С ростом уровня замещения x растет температура сверхпроводящего перехода T_c , достигая максимального значения 33 К при оптимальном уровне $x \sim 0.4$ и концентрации дырок $p \sim 0.15$ на атом меди [12]. При дальнейшем допинге система переходит в режим “*underdoped*”, и, когда концентрация дырок снижается до $p \sim 1/8$ на атом меди ($x \sim 0.7$), на температурных зависимостях удельного сопротивления появляются признаки локализации свободных носителей, перехода металл-диэлектрик (диэлектрическая фаза), а именно, участок температурной зависимости сопротивления полупроводникового типа [12]. Сверхпроводимость существует в диэлектрической фазе до уровней замещения $x \sim 0.8$ ($p \sim 0.1$). Несверхпроводящие образцы с концентрацией дырок $p < 0.1$ характеризуются полупроводниковой температурной зависимостью удельного сопротивления в широком интервале температур.

Монокристаллы с составами $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.2}\text{La}_{0.8}\text{CuO}_{6+\delta}$ и $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.18}\text{La}_{0.82}\text{CuO}_{6+\delta}$ выращены методом свободной кристаллизации в пустотах расплава при его охлаждении от 1020 °С до 920 °С со скоростью 1–2°/час с последующим охлаждением до комнатной температуры со скоростью 100°/час [13], структурные параметры исследованы методами рентгеновской дифрактометрии [14]. Тестирование на сверхпроводимость проводилось по динамической магнитной восприимчивости и по сопротивлению. В образцах не обнаружено сверхпроводящего перехода или его признаков при понижении температуры до температуры 1.8 К. Относительное изменение $\Delta L/L$ длины кристаллов L измерялось дилатометрическим методом с чувствительностью $\sim 5 \cdot 10^{-7}$ вдоль произвольного направления в (ab) -плоскости в диапазоне температур 7–50 К. Измерения проводились относительно плавленого кварца, имеющего малый коэффициент расширения. В экспериментальные результаты вносилась поправка на его температурную зависимость.

На рис. 1 показано изменение длины кристаллов в (ab) -плоскости при их нагревании, измеренное относительно кварца, в постоянном магнитном поле различных значений. Результаты обнаруживают сильное влияние магнитного поля на тепловое расширение образцов, причем эффект зависит от величины и ориентации магнитного поля. Соответствующие температурные зависимости КТР образцов α (рис. 2, рис. 3) представляют собой зависимости величины $(dL/dT)/L$ от температуры с поправкой на температурную зависимость КТР кварца.

При измерениях в нулевом магнитном поле для всех образцов выявлены температурные области сжатия в (ab) -плоскости при нагревании. Отрицательный коэффициент

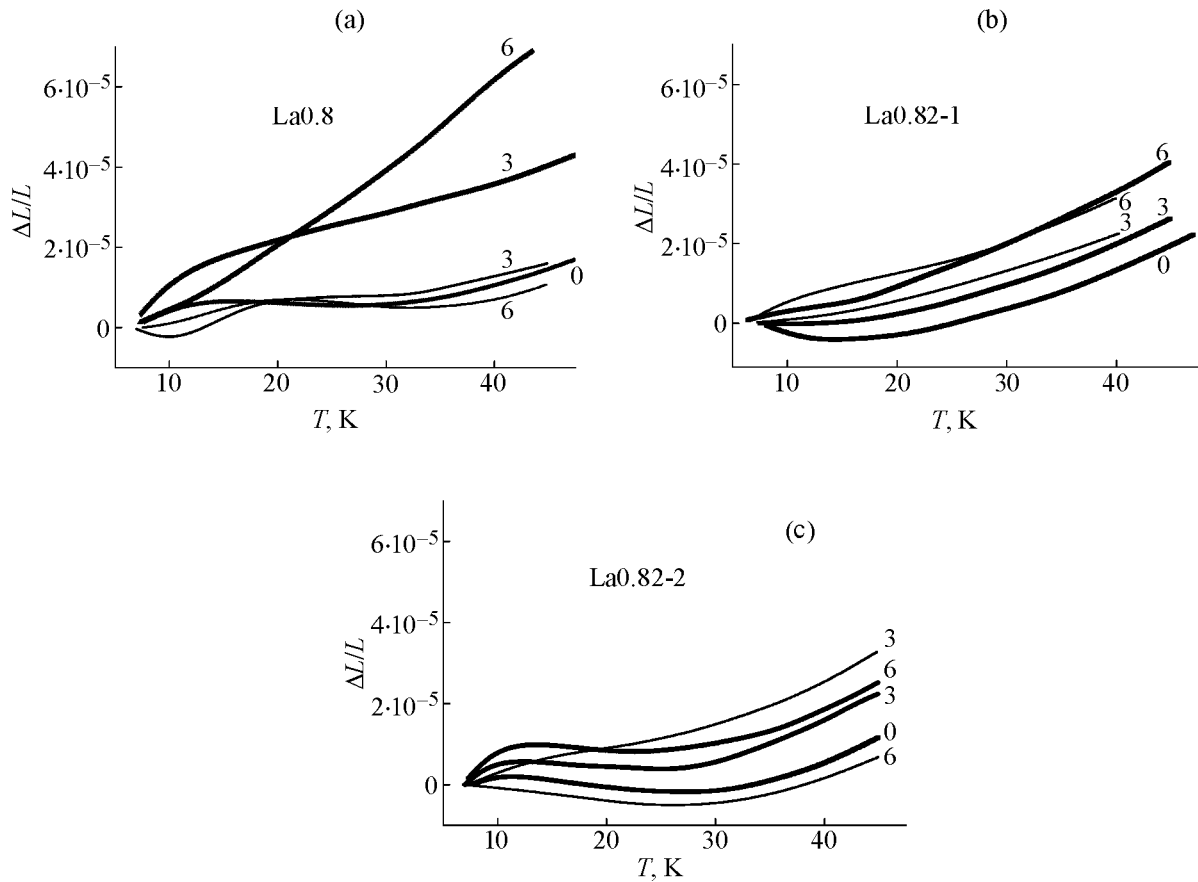


Рис. 1: Температурные зависимости относительного изменения длины $\Delta L/L$ в (ab) -плоскости монокристаллов $Bi_2Sr_{1.2}La_{0.8}CuO_{6+\delta}$ (образец $La0.8$ (a)) и $Bi_2Sr_{1.18}La_{0.82}CuO_{6+\delta}$ (образец $La0.82 - 1$ (b) и образец $La0.82 - 2$ (c)), в магнитном поле 0, 3 и 6 Тл, параллельном (жирные линии) и перпендикулярном (тонкие линии) (ab) -плоскости. Значения магнитного поля указаны рядом с кривыми. Приведены результаты измерений относительно кварца. Положение кривых относительно нуля оси $\Delta L/L$ произвольно.

теплового расширения α обнаруживается в близких температурных диапазонах (рис. 2). Сравнение с полученными ранее данными для сверхпроводящих составов системы $La-Vi2201$ [3] выявило некоторое расширение аномалии в область высоких температур. Расширение температурной области сжатия при доировании лантаном коррелирует со снижением концентрации дырок и ростом уровня напряжений [14]. В физической модели с ВЗП результат объясняется повышением амплитуды ВЗП в результате ослабления экранирования свободными носителями [3, 4].

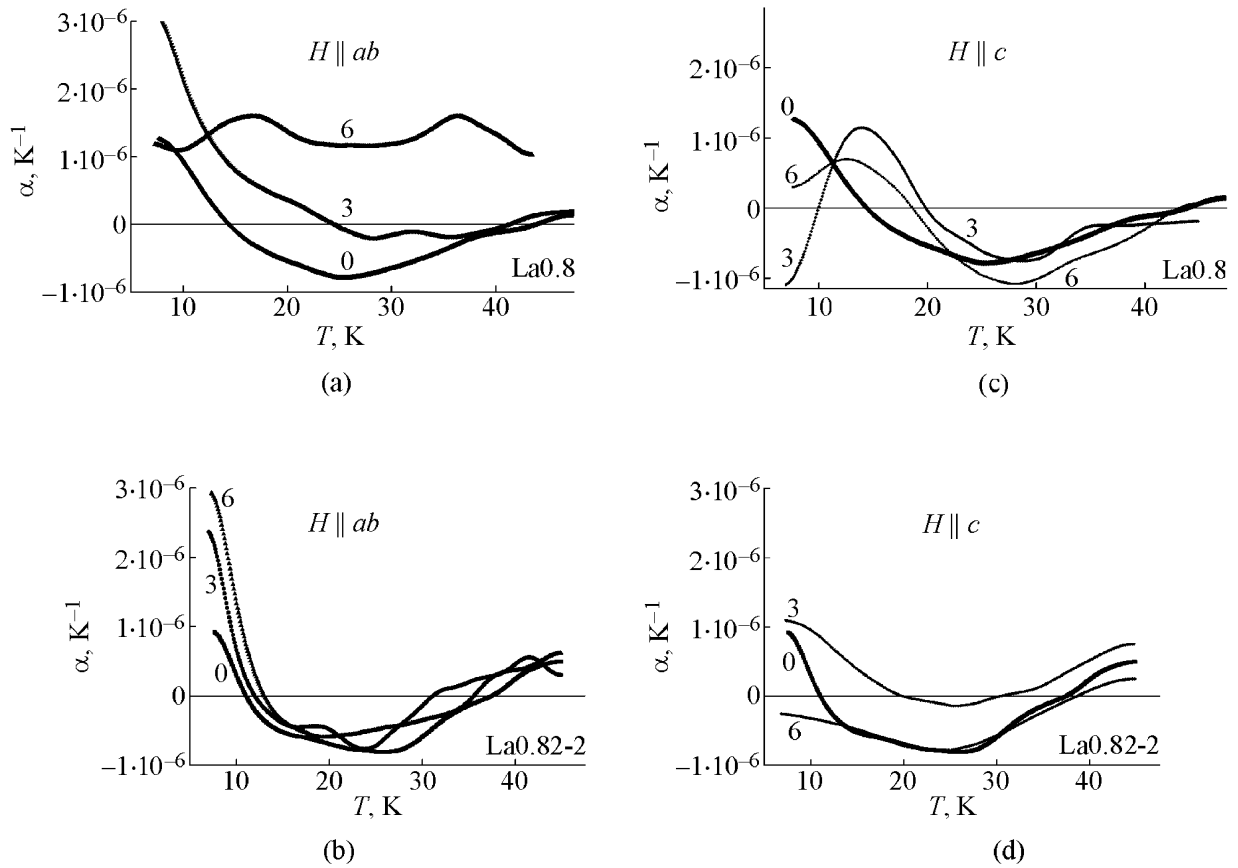


Рис. 2: Температурные зависимости коэффициента теплового расширения α в (ab) -плоскости (с коррекцией на тепловое расширение кварца) монокристаллов $Bi_2Sr_{1.2}La_{0.8}CuO_{6+\delta}$ (образец $La_{0.8}$) и $Bi_2Sr_{1.18}La_{0.82}CuO_{6+\delta}$ (образец $La_{0.82-2}$) в магнитном поле 0, 3 и 6 Тл, параллельном (ab) -плоскости – (a) и (b), и перпендикулярном (ab) -плоскости – (c) и (d). Значения магнитного поля указаны рядом с кривыми.

Измерения во внешнем магнитном поле 3 и 6 Тл в геометрии, когда оно параллельно или перпендикулярно c -оси кристаллов, выявили анизотропный характер влияния поля на тепловое расширение с целым рядом особенностей.

Магнитное поле, приложенное в (ab) -плоскости, подавляет отрицательное тепловое расширение в двух из кристаллов, причем, степень подавления аномалии в образцах различна (рис. 1(a), (b)). Для третьего кристалла (рис. 1(c)) подавление отрицательного теплового расширения параллельным плоскостям полем не обнаруживается. На рис. 2(a), (b) показано, как меняется температурная зависимость КТР в случае максимального и минимального подавления аномалии параллельным (ab) -плоскостям маг-

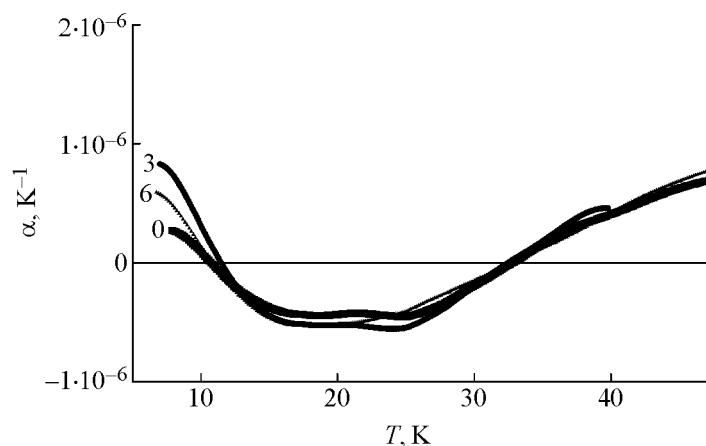


Рис. 3: Температурные зависимости коэффициента теплового расширения α текстурированного несверхпроводящего образца $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ в направлении, перпендикулярном преимущественной ориентации c -оси, в магнитном поле 0, 3 и 6 Тл, приложенном в этом же направлении. Значения магнитного поля указаны рядом с кривыми.

нитным полем. В перпендикулярном (ab)-плоскости поле ($H\parallel c$) (рис. 2(c), (d)) для обоих образцов обнаруживается немонотонный характер влияния магнитного поля на КТР.

Как видно из рис. 1, анизотропное влияние магнитного поля на тепловое расширение исследованных образцов различно. В первом образце (рис. 1(a)) анизотропное влияние ярко выражено, во втором – практически не видно (рис. 1(b)), в третьем – проявляется обратная анизотропия (рис. 1(c)). Это различие определяется тем, что отрицательное тепловое расширение образцов подавляется параллельным магнитным полем в различной степени. Природа такого различия не ясна. Предположительно, оно может быть связано с существованием в исследованных монокристаллах несоразмерных модуляций по b -оси [14]. Линейный КТР в (ab)-плоскости может оказаться анизотропным. Можно также предположить зависимость влияния на КТР параллельного плоскостям магнитного поля ($H\parallel ab$) от угла приложения относительно осей a и b кристалла.

Мы не исключаем также, что различное анизотропное влияние магнитного поля на КТР в различных образцах (рис. 1) является следствием конкуренции двух сосуществующих механизмов аномалии с анизотропным электронным и спиновым упорядочением [4, 5]. Присутствием второго механизма можно объяснить немонотонный характер зависимости КТР материала от магнитного поля ($H\parallel c$) (рис. 2).

В литературе обсуждается сосуществование двух энергетических щелей, сверхпроводящей и диэлектрической ВЗП-щели в частично диэлектризованных ВТСП [15]. Хотя исследуемые образцы диэлектрической фазы La-Bi2201 не обнаруживают сверхпроводящего перехода, в этом материале не исключено присутствие локальной сверхпроводимости, обусловленной флуктуациями плотности состояний вблизи перехода металл-диэлектрик [16]. Действительно, в составах диэлектрической фазы системы La-Bi2201 при $T > T_c$ наблюдается рост удельного сопротивления под действием магнитного поля [12], который можно интерпретировать как восстановление нормального состояния при подавлении флуктуаций сверхпроводимости. Не исключено, что обнаруженные для хорошо сверхпроводящих составов ВТСП аномалии упругих свойств в магнитном поле [18] могут проявиться в режиме флуктуирующей сверхпроводимости.

В настоящей работе мы также провели первые исследования низкотемпературного теплового расширения ВТСП с электронным типом проводимости. Цилиндрический текстурированный образец $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ с преимущественной радиальной ориентацией c -оси не обнаруживал сверхпроводящего перехода вплоть до температуры 1.8 К. Параметр решетки $c = 12.09 \text{ \AA}$ материала отвечает несверхпроводящему составу, близкому к началу сверхпроводимости [17]. Цилиндр был разрезан вдоль оси на два полуцилиндра. Тепловое расширение измерялось на шлифе вдоль оси полуцилиндра, то есть перпендикулярно преимущественной ориентации c -оси. Магнитное поле также прикладывалось в этом направлении. Такая геометрия, качественно, отвечает измерению теплового расширения в (ab) -плоскости, выходящей на шлиф, в параллельном ей магнитном поле. Обнаружены температурные области отрицательного теплового расширения, как в дырочных ВТСП, а также признаки немонотонной зависимости КТР от магнитного поля (рис. 3).

Таким образом, на исследованных монокристаллах системы La-Bi2201 в диэлектрической фазе с составами $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.2}\text{La}_{0.8}\text{CuO}_{6+\delta}$ и $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.18}\text{La}_{0.82}\text{CuO}_{6+\delta}$, не обнаруживающими сверхпроводящего перехода, выявлены температурные области аномального, отрицательного теплового расширения в (ab) -плоскости при низких температурах. Впервые обнаружено также отрицательное тепловое расширение ВТСП с электронным типом проводимости $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$, причем на образце, не имеющем сверхпроводящего перехода. Исследовано влияние внешнего магнитного поля 3 и 6 Тл, приложенного параллельно и перпендикулярно c -оси кристаллов, на аномальную температурную зависимость коэффициента теплового расширения La-Bi2201 в (ab) -плоскости. Обнаружена зависимость КТР от величины и ориентации магнитного поля. Анизотропный

характер влияния магнитного поля на сжатие ВТСП в (ab) -плоскости ассоциируется с анизотропным электронным упорядочением, возможно, с волной зарядовой плотности [4] или спиновым упорядочением [5] в плоскости CuO_2 . Сравнение с результатами, полученными ранее на сверхпроводящих составах La-Bi2201 [3], показывает расширение диапазона температур отрицательного КТР в несверхпроводящей диэлектрической фазе. В модели с ВЗП это объясняется ослаблением экранировки свободными носителями [4]. Однако природа других особенностей аномалии остается не выясненной. К ним относится немонотонное изменение КТР в магнитном поле ($H\parallel c$), а также различная степень подавления аномалии параллельным (ab) -плоскостям магнитным полем в различных образцах материала. Как мы полагаем, такие особенности могут возникнуть при сосуществовании различных электронных механизмов аномалии. Одним из механизмов может являться также флуктуационная сверхпроводимость в диэлектрической фазе. Для более полного понимания природы аномалий теплового расширения ВТСП представляется актуальным экспериментально исследовать зависимости их КТР от магнитного поля в различной геометрии.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, грант № 10-02-01339-а, и Министерства образования и науки.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] N. V. Anshukova, Yu. V. Boguslavski, A. I. Golovaskin, et al., Journal of Superconductivity **7**(2), 427 (1994).
- [2] Н. В. Аншукова, А. И. Головашкин, Л. И. Иванова и др., Письма в ЖЭТФ **71**, 550 (2000).
- [3] Н. В. Аншукова, А. И. Головашкин, Л. И. Иванова и др., ЖЭТФ **129**, 1043 (2006).
- [4] А. И. Головашкин, А. П. Русаков, ФТТ **49**, 1363 (2007).
- [5] A. C. McLaughlin, F. Sher, J. P. Attfield, Nature **436**, 829 (2005).
- [6] A. Hosomichi, Y. Xue, S. Naher, et al., J. Phys. Chem. Sol. **66**, 583 (2005); H. Suzuki, Y. Xue, A. Hosomichi, et al., Supercond. Nov. Magn. **19**, 89 (2006).
- [7] А. И. Дмитриев, В. М. Каминский, Г. В. Лашкарев и др., ФТТ **51**, 2207 (2009).
- [8] А. С. Москвин, Ю. Д. Панов, Н. В. Мельникова, ЖЭТФ **126**, 1267 (2004).
- [9] Y. Kohsaka, C. Taylor, K. Fujita, et al., Science **315**, 1380 (2007).
- [10] W. D. Wise, M. C. Boyer, K. Chatterjee, et al., Nature Physics **4**, 696 (2008).

- [11] A. Damascelli, Z. Hussain, Z.-X. Shen, Rev. Mod. Phys. **75**, 473 (2003).
- [12] S. Ono, Ando Yoichi, T. Murayama, et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 638 (2000).
- [13] R. Manzke, R. Müller, C. Janowitz, et al., Phys. Rev. B **63**, 100504(R) (2001).
- [14] В. П. Мартовицкий, А. Крапф, Л. Дюди, Письма в ЖЭТФ **85**, 349 (2007).
- [15] А. И. Войтенко, А. М. Габович, ФТТ **52**, 20 (2010).
- [16] Т. М. Бурбаев, В. А. Курбатов, ФТТ **40**, 1190 (1998).
- [17] В. И. Воронин, А. Е. Карькин, Б. Н. Гощицкий и др., ФТТ **40**, 117 (1998).
- [18] T. Hanaguri, T. Fukase, T. Suzuki, et al., Physica B **194-196**, 1579 (1994).

Поступила в редакцию 29 декабря 2010 г.